

CT/JP03/12716

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

03.10.03

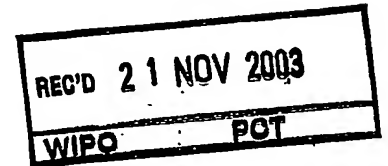
別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 2002年10月 4日
Date of Application:

出願番号 特願2002-291914
Application Number:
[ST. 10/C]: [JP2002-291914]

出願人 NOK株式会社
Applicant(s): 鐘淵化学工業株式会社



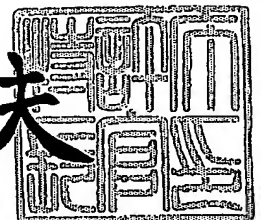
BEST AVAILABLE COPY

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2003年11月 6日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今井康夫



出証番号 出証特2003-3091653

【書類名】 特許願

【整理番号】 19009

【提出日】 平成14年10月 4日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 C09K 3/10
C08L 83/06

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県藤沢市辻堂新町 4-3-1 エヌオーケー株式
会社内

【氏名】 安藤 理

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府摂津市鳥飼西 5-1-1 鐘淵化学工業株式会社
内

【氏名】 中川 佳樹

【特許出願人】

【識別番号】 000004385

【氏名又は名称】 エヌオーケー株式会社

【特許出願人】

【識別番号】 000000941

【氏名又は名称】 鐘淵化学工業株式会社

【代理人】

【識別番号】 100066005

【弁理士】

【氏名又は名称】 吉田 俊夫

【選任した代理人】

【識別番号】 100114351

【弁理士】

【氏名又は名称】 吉田 和子

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 006231

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 燃料電池冷媒用シール材料

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 (A)ヒドロシリル化反応可能なアルケニル基を少なくとも1個有するアクリル系重合体、(B)ヒドロシリル基含有化合物および(C)ヒドロシリル化触媒を必須成分として含有する組成物からなる燃料電池冷媒用シール材料。

【請求項 2】 数平均分子量 M_n が500以上でかつ分子量分布(M_w/M_n)が1.8以下であるアクリル系重合体が組成物の一成分として用いられた請求項 1 記載の燃料電池冷媒用シール材料。

【請求項 3】 組成物を硬化して得られた硬化物が60以下のデュロA硬さ(JIS K6253準拠)を示す請求項 1 または 2 記載の燃料電池冷媒用シール材料。

【請求項 4】 3mm以下のシール全高で成形された請求項 1、2 または 3 記載の燃料電池冷媒用シール材料。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、燃料電池冷媒用シール材料に関する。さらに詳しくは、低硬度にして低反力を示す燃料電池冷媒用シール材料に関する。

【0002】

【従来の技術】

燃料電池用ガスケットでは、自動車搭載用などに向けて小型化する必要がある、燃料電池が全体として積層構造をとることから、構成部品の軽薄化の要求があり、シール部品であるガスケット材料についても軽薄化が求められている。また、セパレータ等にカーボンプレートといった脆性部品を用いているため、脆性部品の破壊の防止が必要とされており、また支持部品の軽薄化により変形が生じ易いため、ガスケット材料の低反力化が求められている。そのため、ガスケット材料は、その硬化前の状態が低粘度であって薄く均一に成形可能であり、硬化成形後には低硬度にして低反力とする必要がある。

【0003】

さらに、燃料電池では、水素、酸素といった気体を発電に用いているため、気体に対する遮蔽性が大きいことが望ましい。また、燃料電池の冷却のためには、LLC(ロングライフクーラント)、メタノール-水混合液等が使用されてきたが、近年は反応効率の向上のため、PEM型燃料電池においても、反応温度が約150～180℃の高温化が進められており、こうした高温化に対しては、冷却液が水系のLLC、メタノール-水混合液等では対応できず、耐熱性の高い鉱物油、シリコン油等といった冷媒油の循環による冷却が求められている。そのため、冷媒循環部分のシール部品としては、冷媒油に対する耐性も求められている。

【0004】

従来の燃料電池用シールには、液状のシリコンゴムや低粘度のフッ素ゴムが用いられているが、液状シリコンゴムでは架橋前の低粘度および架橋後の低硬度は実現できても、シール対象の水素、酸素等の気体に対する遮蔽性が悪く、気体の透過性が大きいといった問題があり、また耐油性も悪く、冷却液に冷媒油を使用できないといった問題がみられる。

【0005】

一方、フッ素ゴムは耐油性や気体遮蔽性の点では十分であるが、ミラブルタイプでは架橋前粘度を十分低下させられず、ガスケットを薄く成形することが困難であり、十分な低硬度化も難しい。また、耐熱・耐油性にすぐれたミラブルタイプアクリルゴムを用いた場合にも同様である。架橋前粘度の低い液状タイプのフッ素ゴムは、この使用目的は達成させるものの、材料コストが非常に高いものとなる。こうした状況から、架橋前は低粘度であり、架橋後は低硬度でガス遮蔽性が良く、耐油性のあるシール材料が求められている。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】

本発明の目的は、硬化前は低粘度で、硬化後は低硬度で低反力であり、気体遮蔽性、耐冷媒油性などを備え、軽薄な成形を可能とするクリーンな燃料電池冷媒用シール材料を提供することにある。

【0007】

【課題を解決するための手段】

かかる本発明の目的は、(A)ヒドロシリル化反応可能なアルケニル基を少なくとも1個有するアクリル系重合体、(B)ヒドロシリル基含有化合物および(C)ヒドロシリル化触媒を必須成分として含有する組成物からなる燃料電池冷媒用シール材料によって達成される。

【0008】

【発明の実施の形態】

燃料電池冷媒用シール材料は、セパレータ外縁部に取付られる山型、凸型、半円型等の断面形状を有しており、冷媒が接触する積層させたセパレータ-セパレータ間に圧縮された状態で用いられる。この冷媒用ガスケットは、前記(A)成分、(B)成分および(C)成分を必須成分とする組成物を硬化(加硫成形)させることにより得られる。

【0009】

(A)成分のヒドロシリル化反応可能なアルケニル基を少なくとも1個、好ましくは末端に少なくとも1個有するアクリル系重合体の主鎖を構成するアクリル酸エステル系モノマーとしては特に限定されず、各種任意のものを用いることができる。

【0010】

例えば、アクリル酸、メタクリル酸、メチルアクリレート、エチルアクリレート、プロピルアクリレート、イソプロピルアクリレート、n-ブチルアクリレート、イソブチルアクリレート、第3ブチルアクリレート、n-ペンチルアクリレート、n-ヘキシルアクリレート、シクロヘキシルアクリレート、n-ヘプチルアクリレート、n-オクチルアクリレート、2-エチルヘキシルアクリレート、ノニルアクリレート、デシルアクリレート、ドデシルアクリレート、フェニルアクリレート、トリイルアクリレート、ベンジルアクリレート、2-メトキシエチルアクリレート、3-メトキシブチルアクリレート、2-ヒドロキシエチルアクリレート、2-ヒドロキシプロピルアクリレート、ステアリルアクリレート、グリシジルアクリレート、2-アミノエチルアクリレート、トリフルオロメチルメチルアクリレート、2-トリフルオロメチルエチルアクリレート、2-パーフルオロエチルエチルアクリレート、2-パーフルオロエチル-2-パーフルオロブチルエチルアクリレート、パーフルオロエチルアクリレート、パーフルオロメチルアクリレート、ジパーフルオロ

メチルメチルアクリレート、2-パーフルオロメチル-2-パーフルオロエチルエチルアクリレート、2-パーフルオロヘキシルエチルアクリレート、2-パーフルオロデシルエチルアクリレート、2-パーフルオロヘキサデシルエチルアクリレート等のアクリル酸エステルまたはこれに対応するメタクリル酸エステル、アクリル酸のエチレンオキサイド付加物、 γ -(メタクリロイルオキシプロピル)トリメトキシシラン等が用いられる。

【0011】

これらの内、生成物の物性などの点からは、好ましくはアクリル酸エステルまたはメタクリル酸エステルが用いられ、特に好ましくはアクリル酸エステル、例えばブチルアクリレート、エチルアクリレート、2-メトキシエチルアクリレート、2-エトキシエチルアクリレート等が1種または2種以上組合せて用いられる。

【0012】

本発明においては、これらの好ましいモノマーを他のモノマーとランダム共重合したり、さらにブロック共重合させてもよく、この際にはこれらの好ましいモノマーであるアクリル酸エステルまたはメタクリル酸エステルが60重量%以上の割合で共重合されていることが好ましい。

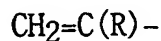
【0013】

また、これらのアクリル酸系またはメタクリル酸系モノマーと共に、約30重量%以下の割合で他のモノマーを共重合させることができ、かかるモノマーとしては、例えばスチレン、ビニルトルエン、 α -メチルスチレン、クロロスチレン、スチレンスルホン酸またはその塩等のスチレン系モノマー；パーフルオロエチレン、パーフルオロプロピレン、フッ化ビニリデン等のフッ素含有ビニルモノマー；ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン等のけい素含有ビニル系モノマー；無水マレイン酸、マレイン酸、マレイン酸のモノアルキルエステルまたはジアルキルエステル；フマル酸、フマル酸のモノアルキルエステルまたはジアルキルエステル；マレイミド、メチルマレイミド、エチルマレイミド、プロピルマレイミド、ブチルマレイミド、ヘキシルマレイミド、オクチルマレイミド、ドデシルマレイミド、ステアリルマレイミド、フェニルマレイミド、シクロヘキシルマレイミド等のマレイミド系モノマー；アクリロニトリル、メタクリロニ

トリル等のニトリル基含有ビニル系モノマー;アクリルアミド、メタクリルアミド等のアミド基含有ビニル系モノマー;酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル、ピバリン酸ビニル、安息香酸ビニル、けい皮酸ビニル等のビニルエステル類;エチレン、プロピレン等のオレフィン類;ブタジエン、イソプレン等の共役ジエン類;塩化ビニル、塩化ビニリデン、塩化アリル、アリルアルコール等が挙げられる。

【0014】

これらのモノマーを共重合させて得られたアクリル系重合体中には、ヒドロシリル化反応可能なアルケニル基が少くとも1個、好ましくは末端に少くとも1個導入される。導入されたアルケニル基は、一般式

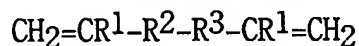


で表わされ、ここでRは水素原子または炭素数1~20の有機基であり、かかる有機基としては炭素数1~20のアルキル基、炭素数6~20のアリール基、炭素数7~20のアラルキル基等が挙げられ、ヒドロシリル基含有化合物との反応性の点からは、Rが水素原子またはメチル基、好ましくは水素原子であるアルケニル基が導入される。

【0015】

かかるアルケニル基の導入は、例えば次のような方法によって行うことができる。

(a)リビングラジカル重合によりアクリル系重合体を合成する際に、所定のアクリル系モノマーと共に、一般式



R¹: 水素原子またはメチル基

R²: エステル基またはo-, m-またはp-フェニレン基

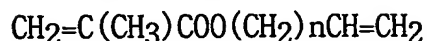
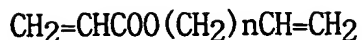
エステル基の場合は(メタ)アクリレート系化合物

フェニレン基の場合はスチレン系化合物

R³: 直接結合または1個以上のエーテル結合を有していてもよい

C₁~C₂₀の有機基

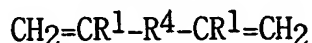
で表わされる、一分子中に重合性のアルケニル基および重合性の低いアルケニル基を併せ持つ化合物、例えば



o-, m-またはp-ジビニルベンゼン

等を反応させる方法

(b)リビングラジカル重合によりアクリル系重合体を合成する際に、重合反応の終期あるいは所定のモノマーの反応終了後に、第2のモノマーとして、重合性の低いアルケニル基を少なくとも2個有する化合物、すなわち一般式



R^1 : 水素原子またはメチル基

R^4 : 1個以上のエーテル結合を含んでいてもよい $\text{C}_1\sim\text{C}_{20}$ の有機基で表わされる化合物、例えば1,5-ヘキサジエン、1,7-オクタジエン、1,9-デカジエン等を反応させる方法

この方法は、一分子当りに導入されるアルケニル基の制御がより容易である。

(c)ハロゲンを少なくとも1個有するアクリル系重合体にアルケニル基を有する各種の有機金属化合物を作用させて、重合体中のハロゲンをアルケニル基に置換する方法など、アクリル系重合体中のハロゲンをアルケニル基に置換する方法

【0016】

これらの方法によってアクリル系重合体中に導入されるアルケニル基は、重合体1分子当たり1~10好ましくは2~8である。

【0017】

アルケニル基を有するアクリル系重合体は、常温で液状の数平均分子量 M_n が500以上、好ましくは1,000~100,000のものが一般に用いられる。この分子量が低くなりすぎると、アクリル系重合体本来の特性が発現され難くなり、一方高すぎると取扱いが困難となる。

【0018】

この重合体の分子量分布、すなわちゲルパーミエーションクロマトグラフィー(GPC)で測定した重量平均分子量と数平均分子量との比(M_w/M_n)は、一般に1.8以下、好ましくは1.5以下、特に好ましくは1.3以下のものが用いられる。この比が1.8以上のものを用いると、物性が低下するようになり好ましくない。なお、GPC

測定による分子量は、クロロホルムを移動相として、ポリスチレンゲルカラムを用い、ポリスチレン換算で求められた。

【0019】

このアルケニル基含有アクリル系重合体は、種々の重合法で得ることができ、その方法は特に限定されないが、モノマーの汎用性、制御の容易性の点からはラジカル重合法が好ましい。ラジカル重合法の中でもリビング重合法がより好ましく、原子移動ラジカル重合法が特に好ましい。

【0020】

ラジカル重合反応は重合速度が速く、ラジカル同士のカップリングなどによる停止反応が起り易いため、一般的には反応の制御が難かしいとされているが、リビングラジカル重合法は特殊な重合系を用いることにより、重合体成長末端での停止反応などの副反応が起り難く、また分子量分布の狭い重合体($M_w/M_n:1.1\sim1.5$ 程度)が得られ、さらにモノマーと開始剤の仕込み比によって分子量を自由にコントロールすることができるという特徴を有する。

【0021】

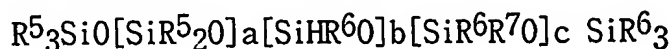
したがって、リビング重合法は、分子量分布が狭く、生成重合体が液状の場合には粘度の低い重合体を得ることができるばかりではなく、特定の官能基を有するモノマーを重合体のほぼ任意の位置に導入することができるため、アルケニル基を有するアクリル系重合体の製造方法としては好ましいものといえる。

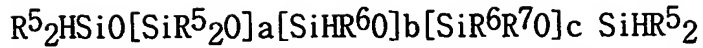
【0022】

なお、リビング重合法とは、狭義においては、末端が常に活性を持ち続けて分子鎖が成長していく重合のことを指しているが、一般には末端が不活性化されたものと活性化されたものが平衡状態にありながら成長していく擬リビング重合も含まれ、本発明におけるリビング重合法は後者である。

【0023】

(B)成分のヒドロシリル基含有化合物としては、(A)成分のアルケニル基を末端に少なくとも1個有するアクリル系重合体との架橋により硬化できる化合物であれば特に制限はなく、例えば一般式





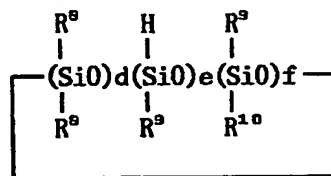
R^5, R^6 : $C_1 \sim C_6$ のアルキル基またはフェニル基

R^7 : $C_1 \sim C_{10}$ のアルキル基またはアラルキル基

$$0 \leq a \leq 100$$

$$2 \leq b \leq 100$$

$$0 \leq c \leq 100$$



R^8, R^9 : $C_1 \sim C_6$ のアルキル基またはフェニル基

R^{10} : $C_1 \sim C_{10}$ のアルキル基またはアラルキル基

$$0 \leq d \leq 8$$

$$2 \leq e \leq 10$$

$$0 \leq f \leq 8$$

$$3 \leq d+e+f \leq 10$$

で表わされる化合物等が用いられる。

【0024】

これらの中でも、平均して1分子中にヒドロシリル基を少なくとも1.1個以上有する鎖状ポリシロキサン、環状シロキサン等の化合物が好んで用いられ、アクリル系重合体との相溶性の観点からは、ヒドロシリル基以外にアルキル基、フェニル基、アルキルフェニル基等を有するシロキサン化合物がより好ましい。これらのヒドロシリル基含有化合物は、1種または2種以上を混合して用いることもできる。

【0025】

アルケニル基含有アクリル系重合体とヒドロシリル基含有化合物とは、任意の割合で混合して用いることができるが、硬化性の点からは、アクリル系重合体中のアルケニル基とヒドロシリル基含有化合物のヒドロシリル基のモル比が5~0.2、好ましくは2.5~0.4の割合で用いられる。このモル比が5以上になると硬化が

不十分で、ベトツキのある強度の小さい硬化物しか得られず、一方0.2以下のモル比では、硬化後も硬化物中に活性なヒドロシリル基が大量に残るので、クラックやボイドが発生し、均一で強度のある硬化物が得られなくなる。

【0026】

また、(C)成分のヒドロシリル化触媒についても特に制御はなく、任意のものが使用できる。具体的には、塩化白金酸、白金の単体やアルミナ、シリカ、カーボンブラック等の担体に固体白金を担持させたもの、さらには

白金-ビニルシロキサン錯体 $\text{Pt}(\text{CH}_2=\text{CHMe}_2\text{SiOSiMe}_2\text{CH}=\text{CH}_2)_n$

$\text{Pt}[(\text{MeCH}_2=\text{CHSiO})_4]_m$

白金-ホスフィン錯体 $\text{Pt}(\text{PPh}_3)_4$

$\text{Pt}(\text{PBu}_3)_4$

白金-ホスファイト錯体 $\text{Pt}[\text{P}(\text{OPh})_3]_4$

$\text{Pt}[\text{P}(\text{OBu})_3]_4$

Me: メチル基

Bu: ブチル基

Ph: フェニル基

Vi: ビニル基($\text{CH}=\text{CH}_2$)

n, m: 正の整数

や白金化合物以外の触媒である $\text{RhCl}(\text{PPh}_3)_3$ 、 RhCl_3 、 $\text{Rh}/\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 RuCl_3 、 IrCl_3 、 FeCl_3 、 AlCl_3 、 $\text{PdCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 、 NiCl_2 、 TiCl_4 等が挙げられ、また白金-炭化水素錯体(米国特許第3,159,601号明細書、同第3,159,662号明細書)や白金-アルコール錯体(同第3,220,972号明細書)等も用いられ、これらは単独でまたは2種以上が併用される。これらのヒドロシリル化触媒の内、触媒活性の点からは塩化白金酸、白金-オレフィン錯体、白金-ビニルシロキサン錯体等が好んで用いられる。

【0027】

触媒量についても特に制限はないが、(A)成分重合体中のアルケニル基1モルに対して $10^{-1} \sim 10^{-8}$ モル、好ましくは $10^{-2} \sim 10^{-6}$ モルの範囲内で用いられる。ヒドロシリル化触媒は、一般に高価で腐食性があり、また水素を大量に発生して硬化物を発泡させてしまう場合があるので、 10^{-1} モル以上は用いない方がよい。

【0028】

これらの(A)、(B)、(C)3成分は、これら必須成分の内の一つでも欠けると加硫成形物(硬化物)が得られなかったり、得られたとしてもゴム弾性や伸びが低下するなどの不具合が発生する。

【0029】

以上の各成分を必須成分とする組成物中には、ゴム用配合剤として、カーボンブラック、ホワイトカーボン等の補強剤、けいそう土、タルク、クレー、グラファイト、けい酸カルシウム、硫酸バリウム、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、水酸化アルミニウム、マイカ等の充填剤、各種金属粉末、ガラス粉末、セラミックス粉末、粒状または粉末状ポリマー等の粉末状固体充填剤、摩耗性や成形性などを改良させる少量の熱可塑性樹脂やゴム、強度や剛性を向上させる短繊維、ステアリン酸、パルミチン酸、パラフィンワックス等の加工助剤、酸化亜鉛、酸化マグネシウム等の受酸剤、アミン系、フェノール系、イミダゾール系等の老化防止剤、安定剤、可塑剤、粘着性付与剤、離型剤、難燃剤、顔料等のゴム工業で一般的に使用されている各種配合剤が、必要に応じて適宜添加されて用いられる。これらの各種配合剤において、操作上からは液状のものを使用することが好ましい。

【0030】

組成物中には3,5-ジメチル-1-ヘキシン-3-オール、3,5-ジメチル-1-ヘキシン-5-オール等の硬化調整剤を、(A)、(B)、(C)各成分の合計量100重量部当り約5重量部以下、好ましくは約0.01~1重量部添加して用いることができる。硬化調整剤は、硬化速度の調節やスコーチを防止するという働きをする。

【0031】

これらの各成分を硬化させて得られる硬化物は、燃料電池冷媒用シール材料としての用途上、60以下の硬さを有することが好ましい。硬化物のデュロA硬さを60以下の低硬度とするためには、組成物中への各種補強剤、充填剤、可塑剤等の添加割合を種々調節することによって可能であり、これらの各種添加剤を添加しないものも所望の低硬度を示している。ただし、補強剤または充填剤として、触媒毒となるイオウやハロゲン等を含むものは好ましくない。

【0032】

組成物の調製は、混練機、3本ペイントロール、ロール、バンバリーミキサ、プラペンダ、ニーダ、高せん断ミキサ等を用いて混合することによって行われる。混合して得られた組成物は、公知の成形方法、例えば射出成形法、押出成形法、圧縮成形法等によりガスケット形状に成形される。

【0033】

【発明の効果】

本発明に係るシール材料は、架橋前は低粘度の組成物を形成し、その組成物を硬化して得られた硬化物は、低硬度で低反力であり、気体遮蔽性、耐冷媒油性などにすぐれているので、車載用などの小型化が要求され、高温環境下で使用される燃料電池冷媒用シール材料として有効に用いられる。また、その成形は、射出成形等により軽薄成形が容易である。

【0034】

【実施例】

次に、実施例について本発明を説明する。

【0035】

実施例 1

アクリル系重合体	100重量部
ホワイトカーボン(日本アエロジル製品アエロジルR974)	25 〳
ヒドロシリル基含有化合物	6 〳
ヒドロシリル化触媒	0.05 〳
硬化調整剤(3,5-ジメチル-1-ヘキシン-3-オール)	0.1 〳
老化防止剤(チバススペシャルティケミカル製品	2 〳

イルガノックス1010)

以上の各成分をプラネタリーミキサおよび3本ロールで混合し、24時間室温に放置した後、180℃、100MPa、20分間の条件下でプレス加硫を行って、テストピースを得た。

【0036】

なお、アクリル系重合体としては、ブチルアクリレート、エチルアクリレート

および2-メトキシエチルアクリレートの共重合体中に1,5-ヘキサジエンを共重合させ、アルケニル基を導入した共重合体を用いられ、この共重合体の数平均分子量 M_n は18000、分子量分布(M_w/M_n)は1.1、共重合体1分子当りに導入された平均アルケニル基数は1.9であるものが用いられ、ヒドロシリル基含有化合物としては、分子中に平均5個のヒドロシリル基と平均5個の α -メチルスチレン基を含有する鎖状シロキサン(Si-H基の量: 3.70ミリモル/g)が用いられ、またヒドロシリル化触媒としては、0価白金の1,1,3,3-テトラメチル-1,3-ジビニルシロキサン錯体を3重量%含有するキシレン溶液がそれぞれ用いられた。

【0037】

実施例 2

実施例1において、ホワイトカーボンが用いられなかった。

【0038】

実施例 3

実施例1において、ホワイトカーボン量が30重量部に変更された。

【0039】

比較例 1

実施例1において、ホワイトカーボン量が50重量部に変更された。

【0040】

比較例 2

アクリルゴム(ユニマテック製品PA402L)	100重量部
ホワイトカーボン(エアロジルR974)	25 〳
沈降イオウ	0.2 〳
ステアリン酸カリウム	1.2 〳
老化防止剤(ノルガノックス)	2 〳

以上の各成分をバンバリーミキサおよびロールで混合し、室温に24時間放置した後、180℃、100MPa、15分間の条件下でプレス加硫を行って、テストピースを得た。

【0041】

以上の各実施例および比較例で得られた加硫前混合物およびテストピースにつ

いて、次の各項目の測定を行い、評価した。

粘度：室温に24時間放置した混合物について、JIS K6300に準じて未加硫時の粘度を測定し、ムーニースコーチ(125℃) V_m が20未満を○、20以上を×と評価(20以上になるとガスケット本体に欠けが生じ、バリも多く発生し、製品成形が困難となる)

硬さ：厚さ2mmのテストシートを3枚重ね合せ、JIS K6253に準じて測定(硬度が60以上になると、本体に組み付けたときのガスケット反力が大きくなってセパレータの破損を生じ、完全に密閉できなくなってガスケットとしてのシール性に劣るようになる)

圧縮反力：JIS K6262に準ずる13mm径の小型試験片を用いて圧縮時の反力を測定し、50%圧縮時の応力が0.4N未満を○、0.4N以上を×と評価

圧縮永久歪：JIS K6262に準じて120℃、168時間後の値を測定し、50%未満を○、50%以上を×と評価

ガス透過性：JIS K7126に準じて常温における水素の気体透過係数(単位： $\text{cm}^3 \cdot \text{cm}/\text{cm}^2 \cdot \text{秒} \cdot \text{cmHg}$)を測定し、 1.0×10^{-8} 未満を○、 1×10^{-8} 以上を×と評価

浸漬試験：JIS K6258に準じて120℃の冷媒シリコン油(信越化学製品KF-96-100cs)中に70時間浸漬した後の体積変化率を測定し、30%未満を○、30%以上を×と評価

また、各実施例および比較例で得られた加硫前混合物を用い、厚さ2mmに加工したSUS303板および樹脂含浸タイプのカーボン材(東洋炭素製品IKC-33)表面に成形品形状が高さ1mmの半円形状断面になるような金型を用い、成形圧200Kgf/cm²で成形して、成形性を評価した。このとき、リップ高さが3mm以上では、積層時の容積が大きくなり、不適である。

成形性：製品の射出成形において、変形、ヒケ、欠け、ウェルド、ショートショット、バリの発生やカバーに一体成形できない現象が生ずるなど所定の製品形状に成形できない不具合がない場合を○、不具合がある場合を×と評価

【0042】

得られた結果は、次の表に示される。

表

測定項目	実-1	実-2	実-3	比-1	比-2
[テストピース評価]					
粘度 V_m	9	9	10	11	28
	○	○	○	○	×
硬さ (JISデュロメータA)	31	12	48	65	48
圧縮反力 (kN)	0.20	0.13	0.28	0.45	0.30
	○	○	○	×	○
圧縮永久歪	32	28	30	32	26
	○	○	○	○	○
ガス透過性 ($\times 10^{-9}$)	6.0	5.2	5.1	5.1	4.6
	○	○	○	○	○
浸漬試験 ΔV (%)	16	16	15	15	13
	○	○	○	○	○
[製品評価]					
成形性	○	○	○	○	×

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 硬化前は低粘度で、硬化後は低硬度で低反力であり、気体遮蔽性、耐冷媒油性などを備え、軽薄な成形を可能とするクリーンな燃料電池冷媒用シール材料を提供する。

【解決手段】 (A)ヒドロシリル化反応可能なアルケニル基を少なくとも1個有するアクリル系重合体、(B)ヒドロシリル基含有化合物および(C)ヒドロシリル化触媒を必須成分として含有する組成物からなる燃料電池冷媒用シール材料。この燃料電池冷媒用シール材料の成形は、射出成形等により軽薄成形が容易であり、自動車搭載用などの小型化が要求される用途に好適に用いられる。

特願 2002-291914

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[000004385]

1. 変更年月日

1990年 8月27日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都港区芝大門1丁目12番15号

氏 名

エヌオーケー株式会社

2. 変更年月日

2003年 7月 4日

[変更理由]

名称変更

住 所

東京都港区芝大門1丁目12番15号

氏 名

NOK株式会社

特願2002-291914

出願人履歴情報

識別番号

[000000941]

1. 変更年月日

1990年 8月27日

[変更理由]

新規登録

住 所

大阪府大阪市北区中之島3丁目2番4号

氏 名

鐘淵化学工業株式会社

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☒ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☒ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.